P/ ENT COOPERATION TREAT

09581560

	From the INTERNATIONAL BUREAU
PCT	То:
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE (PCT Rule 92bis.1 and Administrative Instructions, Section 422) Date of mailing (day/month/year)	BASF AKTIENGESELLSCHAFT D-67056 Ludwigshafen ALLEMAGNE
19 October 1999 (19.10.99)	
Applicant's or agent's file reference 0050/048714	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/EP98/08383	International filing date (day/month/year) 18 December 1998 (18.12.98)
The following indications appeared on record concerning: X the applicant X the inventor	the agent the common representative
Name and Address BRUCHMANN, Bernd	State of Nationality State of Residence DE DE
Giselherstrasse 79 D-67069 Ludwigshafen Germany	Telephone No.
	Facsimile No.
	Teleprinter No.
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the	
the person the name X the add	
Name and Address	State of Nationality State of Residence DE DE
BRUCHMANN, Bernd Bahnhofstrasse 58 D-67251 Freinsheim	Telephone No.
Germany	Facsimile No.
	Teleprinter No.
3. Further observations, if necessary:	
4. A copy of this notification has been sent to:	
X the receiving Office	the designated Offices concerned
the International Searching Authority	X the elected Offices concerned
X the International Preliminary Examining Authority	other:
The International Bureau of WIPO	Authorized officer
34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Céline Faust
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

PALENT COOPERATION TREAT

D958 | 56 CT/EP98/08383

From the INTERNATIONAL BUREAU

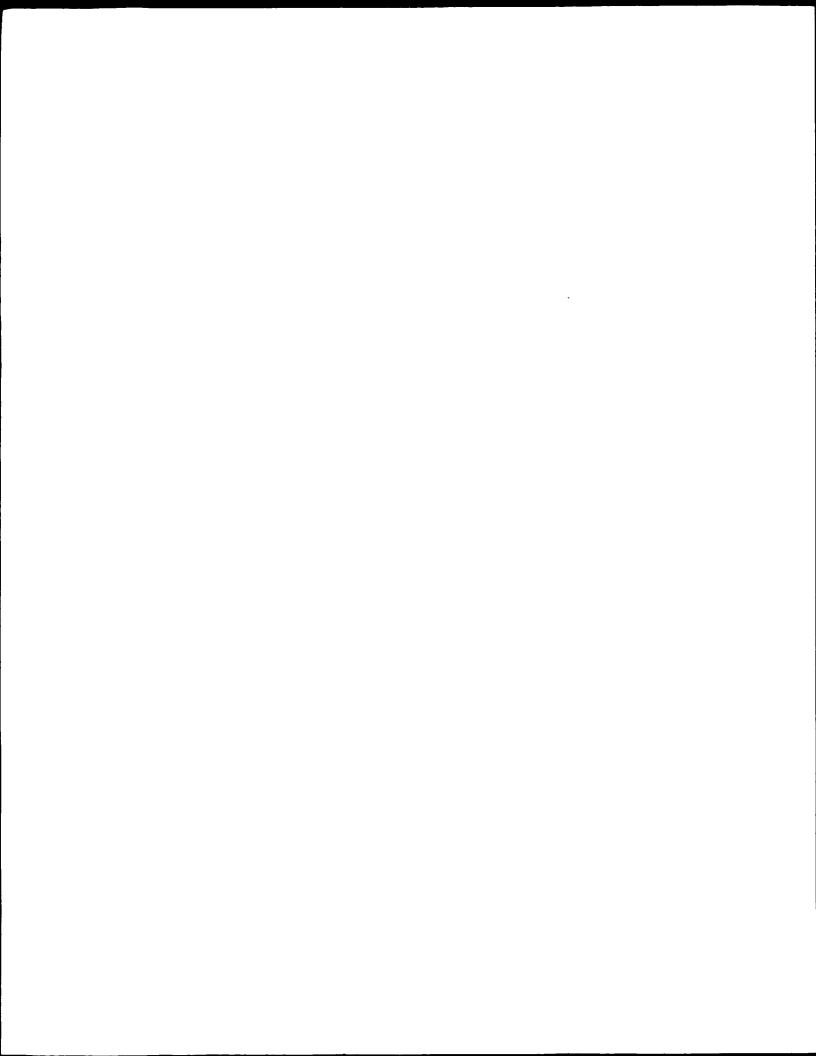
PCT	То:
NOTIFICATION OF ELECTION (PCT Rule 61.2)	United States Patent and Trademark Office (Box PCT) Crystal Plaza 2 Washington, DC 20231 ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE
Date of mailing: 22 July 1999 (22.07.99)	in its capacity as elected Office
International application No.: PCT/EP98/08383	Applicant's or agent's file reference: 0050/048714
International filing date: 18 December 1998 (18.12.98)	Priority date: 16 January 1998 (16.01.98)
Applicant: BRUCHMANN, Bernd et al	
1. The designated Office is hereby notified of its election made X in the demand filed with the International preliminary 02 June 1999 (v Examining Authority on: O2.06.99) national Bureau on:
The International Bureau of WIPO	Authorized officer:

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

J. Zahra

Telephone No.: (41-22) 338.83.38



PATENT COOPERATIO REATY

PCT

1711

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 0050/048714	FOR FURTHER ACTION		cation of Transmittal of International Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No.	International filing date (day/n		Priority date (day/month/year)
PCT/EP98/08383	18 December 1998 (1	•	16 January 1998 (16.01.98)
International Patent Classification (IPC) or n C08G 18/78	ational classification and IPC		
Applicant	BASF AKTIENGESELI	SCHAFT	
This international preliminary example Authority and is transmitted to the approximately and the second secon	mination report has been prep pplicant according to Article 36.	ared by this	International Preliminary Examining
2. This REPORT consists of a total of	6 sheets, including	ng this cover s	heet.
been amended and are the ba		containing re	ion, claims and/or drawings which have ctifications made before this Authority the PCT).
These annexes consist of a to	otal of4 sheets.	•	RECEIVED FEB -8 200 TECHNOLOGY CENT
3. This report contains indications relat	ing to the following items:		自召巴
I Basis of the report			ECEIVED
II Priority			/ED
III Non-establishment	of opinion with regard to novel vention	ty, inventive s	tep and industrial appReability
IV Lack of unity of in-	vention		007
V Reasoned statemen citations and explain	t under Article 35(2) with regar- nations supporting such stateme	d to novelty, in	nventive step or industrial applicability;
VI Certain documents	cited		
VII Certain defects in t	he international application		
VIII Certain observation	s on the international application	n	
Date of submission of the demand	Date of	completion of	f this report
02 June 1999 (02.06.9	į	_	bruary 2000 (17.02.2000)
	·	•	, (
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authori	zed officer	
Facsimile No.	Telepho	one No.	

	 ,	-4	 •
			•
			•

International application No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

PCT/EP98/08383

I. Basis of th	e report		
			ts which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):
	the international	application as originally filed.	
\boxtimes	the description,	pages1-13	_, as originally filed,
_		pages	_, filed with the demand,
		pages	_, filed with the letter of,
		pages	, filed with the letter of
\boxtimes	the claims,	Nos	_ , as originally filed,
		Nos.	, as amended under Article 19,
		Nos.	_, filed with the demand,
		Nos. 1-9	, filed with the letter of 14 January 2000 (14.01.2000) ,
		Nos.	_ , filed with the letter of
	the drawings,	sheets/fig	_ , as originally filed,
_		sheets/fig	_, filed with the demand,
		sheets/fig	, filed with the letter of,
		sheets/fig	_ , filed with the letter of
2. The amend	lments have resulte	ed in the cancellation of:	
	the description,	pages	
	the claims,	Nos	
	the drawings,	sheets/fig	
3. This to go	report has been es beyond the disclo	stablished as if (some of) the amosure as filed, as indicated in the	nendments had not been made, since they have been considered e Supplemental Box (Rule 70.2(c)).
	·	,	
4. Additional	observations, if ne	ecessary:	
			·
			i

			•
			۵

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No. PCT/EP 98/08383

V.	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
	citations and explanations supporting such statement

1.	Statement			
	Novelty (N)	Claims	1-9	YES
		Claims		NO NO
	Inventive step (IS)	Claims	1-9	YES
		Claims		NO NO
	Industrial applicability (IA)	Claims	1-9	YES
		Claims		NO

2. Citations and explanations

Reference is made to the following documents:

D1: DE-A-42 29 183 (BASF)

D2: US-A-5 290 902 (Jacobs et al.).

1. Document D2 describes the preparation of polyisocyanates with isocyanurate groups, in which IPDI is partially trimerised in the presence of an aliphatic alcohol (see D2, columns 16/17, Claims 1-4 and 7-9, and columns 9/10, polyisocyanates 1-6). The alcohols used include compounds such as cyclohexanol, tou-substituted cyclohexanol or cyclohexyl-substituted butanol (cf. D2, column 6, lines 5-9). Reference is also made to the coatings or coating agents as per Examples 5, 10 and 11 of document D2; cf., in particular, columns 13/14, Tables 4 and 5, and column 15, Table 6.

The subject matter of Claims 1 and 5 of the present application differs from the disclosure in D2 in that special monoalcohol and diisocyanate components among those listed in D2 are selected. Moreover, their quantitative proportion is selected such that the proportions of each component lies within the claimed range.

	• **	•

The claimed subject matter therefore appears to be novel (PCT Article 33(2)).

The same differences also apply to coating agents, coatings or methods for coating objects in which mixtures as per the present Claim 1 are used (cf. Claims 7-9).

The problem addressed by the present application (Claims 1 and 5) should be considered to be that of providing isocyanate mixtures (hardeners) with improved properties, for example workability or use properties.

As can be seen from the examples (e.g. owing to the viscosity of the products obtained), this problem was solved by using the mixtures defined in Claim 1; cf. page 9, Example A.2 (NCO-component based on IPDI alone) in comparison with page 11, Table 1, Example 4 (NCO-component based on HDI alone, both components containing the same proportion of monoalcohol).

The available prior art would not prompt a person skilled in the art of paints to modify the isocyanate component (increasing the allophanate and at the same time lowering the isocyanurate proportion).

Consequently, Claims 1, 5 and 7-9 appear to involve an inventive step (PCT Article 33(3)).

3. Claims 2-4 and 6 are dependent on the above claims and therefore likewise meet the PCT novelty and inventive step requirements.

			٠

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP98/08383

tain	published document	s (Rule 70.10)				
_	Application No. Patent No.	Publicat (day/mor	ion date nth/year)	Filing date (day/month/year)	_	Priority date (valid clain (day/month/year)
	US-A-5 789 519	04 August 19	98 (04.08.1998)	12 April 1996 (12.0	4.1996)	
 n-wi	ritten disclosures (Ru	le 70.9)				
 n-wi	ritten disclosures (Ru Kind of non-written			ritten disclosure nth/year)	referring t	of written disclosure to non-written disclosure day/month/year)
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure
n-Wi					referring t	o non-written disclosure
n-wi					referring t	o non-written disclosure

		-

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

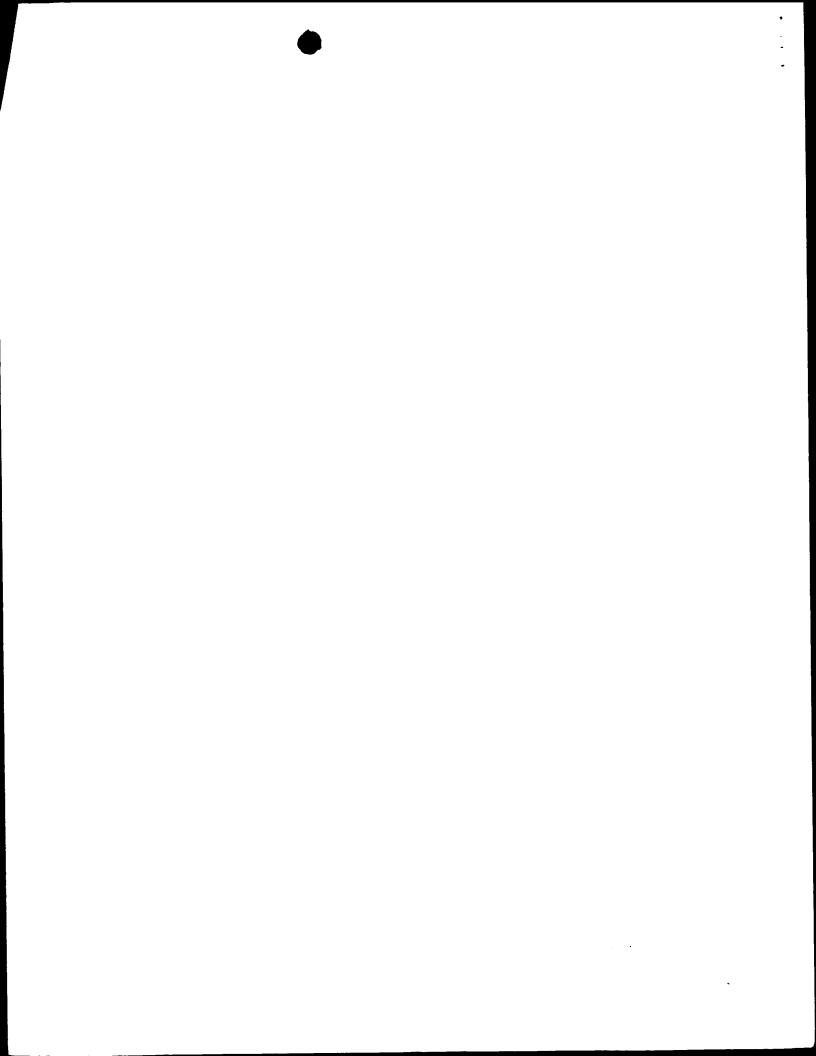
International application No. PCT/EP 98/08383

VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

- (1) The description does not mention the feature of Claim 10 whereby the coating composition is applied within 12 hours. Therefore, contrary to PCT Article 6, the claim is not supported by the description.
- (2) Contrary to PCT Rule 5.1(a)(iii), the description is not in line with the claims.

In particular, the description contains embodiments that are not covered by the present claims. This contradiction between the claims and the description raises doubts about the subject matter for which protection is sought, and for this reason the claims are not clear (PCT Article 6).





PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts		g über die Übermittlung des internationalen richts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit
0050/048714	VORGEHEN zutreffend, nach	hstehender Punkt 5
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
PCT/EP 98/08383	18/12/1998	16/01/1998
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et	al.	
Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem In		hörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß
		er. nannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.
Grundlage des Berichts		
a. Hinsichtlich der Sprache ist die inte durchgeführt worden, in der sie eine	ernationale Recherche auf der Grundlage gereicht wurde, sofern unter diesem Punk	der internationalen Anmeldung in der Sprache t nichts anderes angegeben ist.
Die internationale Recherch Anmeldung (Regel 23.1 b))	ne ist auf der Grundlage einer bei der Beh durchgeführt worden.	örde eingereichten Übersetzung der internationalen
Recherche auf der Grundlage des	Sequenzprotokolls durchgeführt worden, o	d/oder Aminosäuresequenz ist die internationale das
I 🖃	eldung in Schriflicher Form enthalten ist.	orm oingereight worden ist
	onalen Anmeldung in computerlesbarer F	
· :	ch in schriftlicher Form eingereicht worden	
1 -	ch in computerlesbarer Form eingereicht w	
internationalen Anmeldung	im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde v	
Die Erklärung, daß die in co wurde vorgelegt.	omputerlesbarer Form erfaßten Informatio	nen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen,
2. Bestimmte Ansprüche ha	ben sich als nicht recherchierbar erwie	esen (siehe Feld I).
3. Mangelnde Einheitlichkei	t der Erfindung (siehe Feld II).	
4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfli	ndung	
X wird der vom Anmelder ein	gereichte Wortlaut genehmigt.	
wurde der Wortlaut von der	Behörde wie folgt festgesetzt:	
5. Hinsichtlich der Zusammenfassung		
wurde der Wortlaut nach R	e innerhalb eines Monats nach dem Datui	n Fassung von der Behörde festgesetzt. Der m der Absendung dieses internationalen
6. Folgende Abbildung der Zeichnungen	ist mit der Zusammenfassung zu veröffen	itlichen: Abb. Nr.
wie vom Anmelder vorgesc	hlagen	keine der Abb.
weil der Anmelder selbst ke	eine Abbildung vorgeschlagen hat.	
weil diese Abbildung die Er	findung besser kennzeichnet.	

			•

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT



A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 C08G18/78 C09D175/04 C08G18/79 C08G18/80

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) $IPK \ 6 \ C08G \ C09D$

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

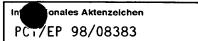
Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
US 5 789 519 A (SLACK WILLIAM E ET AL) 4. August 1998 siehe Spalte 1, Zeile 46 - Spalte 6, Zeile 18 siehe Beispiele 9-11; Tabelle 1 siehe Ansprüche 1,2,4,21	1-4,7,9, 10
EP 0 535 483 A (MILES INC) 7. April 1993 siehe Seite 2, Spalte 2, Zeile 49 - Seite 5, Spalte 7, Zeile 6 siehe Beispiel 1 siehe Ansprüche 1,5,10	1,3,7-9
_/	
	US 5 789 519 A (SLACK WILLIAM E ET AL) 4. August 1998 siehe Spalte 1, Zeile 46 - Spalte 6, Zeile 18 siehe Beispiele 9-11; Tabelle 1 siehe Ansprüche 1,2,4,21 EP 0 535 483 A (MILES INC) 7. April 1993 siehe Seite 2, Spalte 2, Zeile 49 - Seite 5, Spalte 7, Zeile 6 siehe Beispiel 1

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie
 Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist 	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
14. April 1999	26/04/1999
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	Bevollmächtigter Bedlensteter
Fax: (+31-70) 340-3016	Neugebauer, U

1

·			

INTERNATIONALER BECHERCHENBERICHT



		FCI/EF 90	
C.(Fortsetz	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	enden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 5 290 902 A (JACOBS PATRICIA B ET AL) 1. März 1994 siehe Spalte 2, Zeile 50 - Spalte 8, Zeile 17 siehe Beispiele 1,2,5 siehe Ansprüche 1-3,13		1,3,7,9
A	siehe Ansprüche 1-3,13 DE 42 29 183 A (BASF AG) 3. März 1994 in der Anmeldung erwähnt siehe Seite 3, Zeile 23 - Seite 4, Zeile 59 siehe Beispiel XI; Tabelle II siehe Ansprüche 1,3		1-3

1

•			•
		•	
:			
	•		

INTERMATIONAL SEARCH REPORT

ion on patent family members

PC1/EP 98/08383

	t document search repor	t	Publication date	f	Patent family member(s)	Publication date
US 57	89519	Α	04-08-1998	CA	2187124 A	13-10-1997
EP 05	535483	Α	07-04-1993	CA DE ES US DE	2097373 A 69210932 D 2087386 T 5444146 A 69210932 T	01-12-1994 27-06-1996 16-07-1996 22-08-1994 02-10-1996
US 52	290902	Α	01-03-1994	CA	2125237 A	23-12-1994
DE 42	229183	A	03-03-1994	AT CA DE DK EP ES JP US ZA	151791 T 2105325 A 59306163 D 585835 T 0585835 A 2099875 T 6157709 A 5369207 A 9306431 A	15-05-1997 03-03-1994 22-05-1997 20-05-1997 09-03-1994 01-06-1997 07-06-1994 29-11-1994 01-03-1995

				•	٠
			•	•	
		•			
	•				

VERTRAG ÜBER 💭 INTERNATIONALE ZUSAM NARBEIT AUF DEM **GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

REC'D 2 1 FEB 2000

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeiche	n des	Anmelders oder Anwalts	WEITERES VORGEH		ilung über die Übersendung des internationalen	
0050/048	714		WEITERES VONGERI	vorlaufiger	Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationa	les Ak	ctenzeichen	Internationales Anmeldedatu	m <i>(Tag/Monat/Jahr</i>	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)	
PCT/EP9	8/08	383	18/12/1998		16/01/1998	
Internationa C08G18/		tentklassification (IPK) oder	nationale Klassifikation und IPI	<		
Anmelder						
BASF AK	TIEN	NGESELLSCHAFT et a	al.			
			fungsbericht wurde von de elder gemäß Artikel 36 übe		onale vorläufigen Prüfung beauftragte	
2. Diese	r BEF	RICHT umfaßt insgesamt	6 Blätter einschließlich di	eses Deckblatts.		
ui B	Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT). Diese Anlagen umfassen insgesamt 4 Blätter.					
3. Diese	r Beri	icht enthält Angaben zu i	olgenden Punkten:			
5. 5.655	_	-				
!	⊠ ⊠	Grundlage des Berichts	•			
!!		Priorität	Cutachtana übar Naubait	orlindorische Tät	igkeit und gewerbliche Anwendbarkeit	
III IV		•		enindensche Fat	igkeit und geweibliche Anwendbarkeit	
v	⊠	Begründete Feststellun	•		t, der erfinderische Tätigkeit und der zung dieser Feststellung	
l vi	\boxtimes	Bestimmte angeführte		.	3	
VII		_	internationalen Anmeldung	1		
VIII	⊠	Bestimmte Bemerkung	en zur internationalen Anm	eldung		
Datum der	Einreid	chung des Antrags	D	atum der Fertigstell	ung dieses Berichts	
02/06/19	99		17	7.02.2000		
1		nschrift der mit der internatio gten Behörde:	nalen vorläufigen Be	evollmächtigter Bec	iensteter against the contraction of the contractio	
	Euro D-80	ppäisches Patentamt 0298 München		eiberlich, P		
		+49 89 2399 - 0 Tx: 523656 : +49 89 2399 - 4465	·	al Nr ±49.89.2399	8663	

Tel. Nr. +49 89 2399 8663

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER **PRÜFUNGSBERICHT**

I. Grundlage des B richts

Internationales Aktenzeichen PCT/EP98/08383

1.	Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (Ersatzblätter, die dem Ann
	Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursj
	t tit till till store till store till store at alle store till sto

1.	Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten.):								
	Bes	Beschreibung, Seiten:							
	1-1:	3 ι	ursprüngliche	Fass	ung				
	Pat	entansprüche, Nr.:							
	1-9	6	eingegangen a	am		18/01/2000	mit Schreiben	vom	14/01/2000
2.	Auf	grund der Änderunge	en sind folgen	de Ur	nterlagen fort	gefallen:			
		Beschreibung,	Seiten:						
		Ansprüche,	Nr.:						
		Zeichnungen,	Blatt:						
3.		Dieser Bericht ist ol angegebenen Grün eingereichten Fass	den nach Auf	fassu	ng der Behö	rde über der	erungen erstellt n Offenbarungsg	worde ehalt i	en, da diese aus den in der ursprünglich
4.	Etw	aige zusätzliche Ber	merkungen:						
٧.		gründete Feststellu verblichen Anwend							hen Tätigkeit und d tstellung
1.	Fes	tstellung							
	Ne	uheit (N)		Ja: Nein:	Ansprüche Ansprüche	1-9			
	Erfi	nderische Tätigkeit (Ja: Nein:	Ansprüche Ansprüche	1-9			
	Ge	werbliche Anwendba		Ja: Nein:	Ansprüche Ansprüche	1-9			
2.	Unt	erlagen und Erklärui	ngen						
	sie	h B iblatt							

			-
			-
•			

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP98/08383

VI. Bestimmte angeführte Unterlagen

- Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10) und / oder
- 2. Nicht-schriftliche Offenbarungen (Regel 70.9)

siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

siehe Beiblatt

			-
			-

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: DE-A-42 29 183 (BASF)

D2: US-A-5 290 902 (Jacobs et al.)

1. Dokument D2 beschreibt die Herstellung Isocyanuratgruppen-haltiger Polyisocyanate, wobei IPDI in Gegenwart eines aliphatischen Alkohols teilweise trimerisiert wird (s. D2, Sp. 16/17, Ansprüche 1-4 und 7-9 sowie Sp. 9/10, Polyisocyanate 1 bis 6). Die zu verwendenden Alkohole schließen Verbindungen wie Cyclohexanol, ¹Bu-subst. Cyclohexanol oder cyclohexyl-subst. Butanol ein (vgl. D2, Sp. 6/Z. 5-9). Es wird darüber hinaus auf die Beschichtungen bzw. Beschichtungsmittel gemäß den Beispielen 5, 10 und 11 des Dokuments D2 verwiesen; vgl. insbes. Sp. 13/14, Tabelle 4 und 5, Sp. 15/Tabelle 6.

Der Gegenstand der Ansprüche 1 und 5 der vorliegenden Anmeldung unterscheidet sich von dem in D2 offenbarten dadurch, daß spezielle Monoalkohol- und Diisocyanat-Komponenten innerhalb der in D2 genannten gewählt werden. Überdies wird das Mengenverhältnis so gewählt daß die Anteile der jeweiligen Komponenten innerhalb der beanspruchten Bereiche liegen.

Der beanspruchte Gegenstand erscheint daher neu, Artikel 33(2) PCT.

Gleiches gilt aus den genannten Unterschieden auch für Beschichtungsmittel, Beschichtungen oder Verfahren zum Beschichten von Gegenständen, bei denen Mischungen entsprechend vorliegendem Anspruch 1 zur Anwendung kommen (vgl. Ansprüche 7 bis 9).

Das mit vorliegender Anmeldung (Ansprüche 1 und 5) zu lösende Problem ist in 2.

der Bereitstellung von Isocyanat-Mischungen (Härtern) mit verbesserten Eigenschaften, z.B. die Verarbeitbarkeit oder Gebrauchseigenschaften betreffend, zu sehen.

Wie aus den Beispielen (z.B. anhand der jeweiligen Viskositäten der erhaltenen Produkte) zu ersehen, wurde diese Aufgabe durch Verwendung der in Anspruch 1 definierten Mischungen gelöst; vgl. S. 9/Beispiel A.2 (NCO-Komponente auf Basis von IPDI alleine) gegenüber S. 11/Tabelle 1, Beispiel 4 (NCO-Komponente auf Basis von HDI alleine, beide Komponenten jeweils mit den gleichen Anteilen des Monoalkohols).

Anhand des vorliegenden Standes der Technik war für den Fachmann auf dem Lacksektor keine Anregung gegeben, die ihn zur Modifikation der Isocyanat-Komponente (Erhöhung des Allophanat- und gleichzeitige Erniedrigung des Isocyanuratanteils) veranlassen konnte.

Das Vorhandensein einer erfinderischen Tätigkeit scheint daher für die Ansprüche 1, 5 und 7-9 gegeben (Art. 33(3) PCT).

Die Ansprüche 2-4 und 6 sind von den Ansprüchen oder abhängig und erfüllen 3. damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.

Zu Punkt VI

Bestimmte angeführte Unterlagen

Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)

			Prioritätsdatum
Anmelde Nr.	Veröffentlichungsdatum	Anmeldedatum	(zu Recht beansprucht)
Patent Nr.	(Tag/Monat/Jahr)	(Tag/Monat/Jahr)	(Tag/Monat/Jahr)
US-A-5 789 519	04.08.98	12.04.96	

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Das Merkmal des Anspruchs 10, betreffend die flächige Auftragung der Beschich-(1)

tungszusammensetzung binnen 12 Stunden, wird in der Beschreibung nicht genannt. Der Anspruch wird daher nicht, wie in Artikel 6 PCT vorgeschrieben, von der Beschreibung gestützt.

- (2) Die Beschreibung steht nicht, wie in Regel 5.1 a) iii) PCT vorgeschrieben, in Einklang mit den Ansprüchen.
 - Insbesondere enthält die Beschreibung Ausführungsbeispiele, die nicht unter die vorliegenden Ansprüche fallen. Dieser Widerspruch zwischen den Ansprüchen und der Beschreibung führt zu Zweifeln bezüglich des Gegenstandes des Schutzbegehrens, weshalb die Ansprüche nicht klar sind (Artikel 6 PCT).

		•
٠		

5



Patentansprüche

- 1. Mischungen enthaltend
- Diisocyanate der Formel (I),

10 $\begin{array}{c|c}
 & OCN - R^1 - N - CO - NH - R^2 - NCO \\
 & CO \\
 & OR^3
\end{array}$ (I)

in der die Reste die folgende Bedeutung haben:

R1, R2: beide Reste ein Rest der Formel (II)

 $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$ (II)

20 (Diisocyanate Ia)

ein Rest der Formel (II) und der andere Rest ein Rest der Formel (III)

25

15

$$H_3C$$
 CH_2
 CH_3
 CH_3

- 30 (Diisocyanate Ib)
- R³: ein 5 oder 6 gliedriger Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3 Wasserstoffatome durch C₁- bis C₄-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder eine tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein können oder
- ein C₁- bis C₄-Alkylrest, bei dem ein Wasserstoffatom substituiert ist durch einen 5 oder 6 gliedrigen Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3 Wasserstoffatome durch C₁-bis C₄-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein können, einen Pyrrolidon- oder

		•

einen Morpholinrest, wobei bei den beiden letztgenannten Resten das N-Atom an den Alkylrest gebunden ist

- Urethane der Formel (IV)

5

 $OCN-R^1-NH-CO-OR^3$ (IV)

in der die Reste \mathbb{R}^1 und \mathbb{R}^3 die folgende Bedeutung haben können:

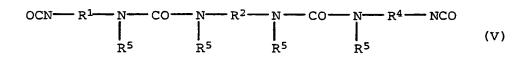
10

R¹ ein Rest der Formel (II) oder (III)

R³ die in Anspruch 1 angegegebene Bedeutung,

Diisocyanate der Formel (V),

15



in der die Reste R^1 , R^2 , R^4 und R^5 die folgende Bedeutung haben können:

 \mathbb{R}^1 , \mathbb{R}^2 , \mathbb{R}^4 die für \mathbb{R}^1 in Formel (I) angegebene Bedeutung,

25

R⁵ 2 der insgesamt 4 Reste Wasserstoff und die beiden anderen Reste ein Rest der Formel VI

 $-CO-O-R^3$ (VI)

sind, wobei die Reste ${\ensuremath{R}}^5$ mit der gleichen Bedeutung durch die Einheit ${\ensuremath{R}}^2$ getrennt sind und

Isocyanurate, aufgebaut aus 3 Molekülen, ausgewählt aus der Gruppe Isophorondiisocyanat oder Hexamethylendiisocyanat (Monoisocyanurate VII),

wobei das Gew.-Verhältnis von Diisocyanaten (I) zu Monoiso-40 cyanuraten (VII) 10:1 bis 1:10 beträgt.

2. Diisocyanate nach Anspruch 1, bei denen der Rest R³ von einem Alkohol, ausgewählt aus der Gruppe Cyclohexanol, Cyclohexanmethanol, Cyclopentanol, Cyclopentanmethanol, 3,3,5-Trime-

thylcyclohexanol, Menthol, Norborneol, N-Methyl-4-hydroxy-piperidin, 4-(2-Hydroxyethyl)-morpholin oder 4-(2-Hydroxyethyl)-pyrrolidon abgeleitet ist.

		,
		-

15

40

- Mischungen nach Anspruch 1 oder 2, wobei der Anteil an Isophorondiisocyanat oder Hexamethylendiisocyanat weniger als 0,5 Gew.-% beträgt.
- 5 4. Mischungen nach den Ansprüchen 1 bis 3, wobei die Summe der Anteile der Diisocyanate (Ia), (Ib), (Ic), (V), des Urethans (IV) sowie des Isocyanurates (VII) 10 bis 100 Gew.-% ausmacht.
- 10 5. Verfahren zur Herstellung von Mischungen nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man
 - (i) Isophorondiisocyanat, Hexamethylendiisocyanat, oder eine Mischung dieser Isocyanate mit einem

- 5 oder 6 gliedrigen cycloaliphatischen Alkohol, bei dem bis zu 3 an ein C-Atom gebundene Wasserstoffatome durch C₁- bis C₄-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein können oder

C1- bis C4-Alkylalkohol, bei dem ein an ein
C-Atom gebundenes Wasserstoffatom substituiert
ist durch einen 5 oder 6 gliedrigen Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3 Wasserstoffatome durch
C1- bis C4-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein
tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen
C1- bis C4-Alkylrest trägt, substituiert sein
können, einen Pyrrolidon- oder Morpholinrest,
wobei die beiden letztgenannten Reste über das
N-Atom an den Alkylrest des Alkohols gebunden
sind,

wobei das Molverhältnis der genannten Isocyanate zu dem genannten Monoalkohol 1,5:1 bis 20:1 beträgt, in Gegenwart eines Katalysators umsetzt,

- (ii) den Katalysator desaktiviert und
- (iii) gegebenenfalls nicht umgesetztes Isocyanat entfernt.
- 45 6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzung so lange durchführt, bis das erhaltene Umsetzungsprodukt nach der Entfernung von noch gegebenenfalls vor-

		•



handenem nicht umgesetzten Isophorondiisocyanat oder Hexamethylendiisocyanat eine Viskosität von 100 bis 10000 mPas, gemessen nach ISO 3219, Anhang B aufweist.

- 5 7. Zwei-Komponenten-Beschichtungsmittel, enthaltend eine Verbindung, die mit Polyisocyanat reagierende Gruppen trägt (A-Komponente), sowie eine Mischung nach Anspruch 1 (I) (B-Komponente).
- 10 8. Verfahren zum Beschichten von Gegenständen, dadurch gekennzeichnet, daß man
 - eine Beschichtungszusammensetzung nach Anspruch 9 durch Vermischung der Komponenten (A) und (B) herstellt und

die Beschichtungszusammensetzung innerhalb von 12 h nach deren Herstellung auf einen Gegenstand flächig aufträgt.

Beschichtete Gegenstände hergestellt nach Anspruch 8.

25

30

35

40

45

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUN

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

C08G 18/78, C09D 175/04, C08G 18/79, 18/80

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 99/36455

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

22. Juli 1999 (22.07.99)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP98/08383

(22) Internationales Anmeldedatum:

18. Dezember 1998

(18.12.98)

A1

(81) Bestimmungsstaaten: JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(30) Prioritätsdaten:

198 01 322.1

16. Januar 1998 (16,01,98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BASF AK-TIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BRUCHMANN, Bernd [DE/DE]; Giselherstrasse 79, D-67069 Ludwigshafen (DE). RENZ, Hans [DE/DE]; Gartenstrasse 45, D-67149 Meckenheim (DE). MOHRHARDT, Günter [DE/DE]; Verdistrasse 19, D-67346 Speyer (DE). BÖCK, Harald [DE/DE]; Rehbachstrasse 42, D-67141 Neuhofen (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BASF AKTIENGESELLSCHAFT; D-67056 Ludwigshafen (DE).

(54) Title: DIISOCYANATES WITH ALLOPHANATE GROUPS DERIVED FROM ALICYCLIC ALCOHOLS

(54) Bezeichnung: DIISOCYANATE MIT ALLOPHANATGRUPPEN ABGELEITET VON ALICYCLISCHEN ALKOHOLEN

(57) Abstract

The invention relates to diisocyanates of formula (I) in which the radicals have the following meanings: R1, R2: both radicals are a radical of formula (II) -CH2-CH2-CH2-CH2-CH2-(diisocyanates Ia); one radical is a radical of formula (II) and the other radical is a radical of formula (III) (diisocyanates Ib); both radicals are a radical of formula (III) (diisocyanates Ic); R³ is a 5 or 6 linked cycloalkyl radical in which up to 3 hydrogen atoms can be substituted by C₁- to C₄-alkyl radicals and one or two methylene units can be substituted by an oxygen atom and/or by a tertiary nitrogen atom which additionally carries a C_1 - to C_4 -alkyl radical. R^3 can also be a C_1 - to C_4 -alkyl radical in which a hydrogen atom is substituted by a 5 or 6 linked cycloalkyl radical in which up to 3 hydrogen atoms can be substituted by C₁- to C₄-alkyl radicals and one or two methylene units can be substituted by an oxygen atom and/or by a tertiary nitrogen atom, said atom additionally carrying a C₁- to C₄-alkyl radical, and R³ is a pyrrolidone radical or a morpholine radical, whereby, with regard to both last-named radicals, the N-atom is bonded on the alkyl radical.

(57) Zusammenfassung

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Species	LS	Lacata		
AM	Amenien	FI	Spanien Finnland		Lesotho	SI	Slowenien
AT				LT	Litauen	SK	Slowakei
	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MÇ	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungam	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
ВJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neusceland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ.	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Diisocyanate mit Allophanatgruppen abgeleitet von alicyclischen Alkoholen

5 Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft Diisocyanate der allgemeinen Formel (I)

10 OCN R^1 N CO NH R^2 NCO

CO

OR3

15 in der die Reste die folgende Bedeutung haben:

R1, R2: beide Reste ein Rest der Formel (II)

$$-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$$
 (II)

20

(Diisocyanate Ia)

ein Rest ein Rest der Formel (II) und der andere Rest ein Rest der Formel (III)

25

$$H_3C$$
 CH_2
 CH_3
 CH_3

30

(Diisocyanate Ib)

beide Reste ein Rest der Formel (III) (Diisocyanate Ic).

35 R³: ein 5 oder 6 gliedriger Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3
Wasserstoffatome durch C₁- bis C₄-Alkylreste und ein oder zwei
Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder eine tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein können oder

40

45

ein C_1 - bis C_4 -Alkylrest, bei dem ein Wasserstoffatom substituiert ist durch einen 5 oder 6 gliedrigen Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3 Wasserstoffatome durch C_1 - bis C_4 -Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder eine tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C_1 - bis C_4 -Alkylrest trägt, substituiert sein können, einen Pyrrolidon- oder einen Morpholinrest, wobei bei den beiden

letztgenannten Resten das N-Atom an den Alkylrest gebunden ist.

Weiterhin betrifft die Erfindung Isocyanat-Mischungen und 2-Kom-5 ponenten-Beschichtungsmittel, die diese Isocyanate enthalten. Beschichtungsverfahren, bei denen diese 2-Komponenten-Beschichtungsmittel eingesetzt werden sowie die nach diesen Verfahren hergestellten beschichteten Gegenstände.

- 10 Vernetzende Polyisocyanate und Bindemittelkomponenten mit gegenüber Isocyanaten reaktiven Gruppen sind z.B. in Form von 2-K-Lakken allgemein bekannt (vgl. Kunststoff Handbuch, Band 7, Polyurethan, 2. Auflage, 1983, Carl Hanser Verlag München Wien, S. 540 bis 561). Diese 2-Komponenten-Beschichtungsmittel enthalten
- 15 als Bindemittel beispielsweise ein polymeres Polyol und als Vernetzerkomponente (Härter) eine Verbindung mit mehreren freien Isocyanatgruppen.

Die Gebrauchseigenschaften von Lacken. deren polymere Bindemittel 20 mit den Isocyanaten vernetzt wurden, sind gegenüber Systemen mit niedermolekularen Bindemitteln deutlich verbessert. Dies betrifft insbesondere Gebrauchseigenschaften wie

- Unempfindlichkeit gegenüber mechanischer Beanspruchung wie
 Zug, Dehnung, Schlägen oder Abrieb
 - Resistenz gegenüber Feuchtigkeit (z.B. in Form von Wasserdampf) und verdünnten Chemikalien
- 30 Beständigkeit gegenüber Umwelteinflüssen wie Temperaturschwankungen und UV-Strahlung
 - hoher Glanz der beschichteten Oberflächen.

40

35 Es wird erwartet, daß die Härter nicht nur den ausgehärteten Lakken die vorgenannten Gebrauchseigenschaften verleihen, sondern auch die verarbeitungstechnischen Eigenschaften der Lacke vor deren Auftrag verbessert oder zumindest möglichst wenig beeinträchtigt.

Damit die Lacke problemlos mit üblichen Verfahren, z.B. durch Aufsprühen auf die zu beschichtende Oberfläche. aufgetragen werden können, sollen die Lacke eine begrenzte Viskosität aufweisen. Lacke auf Basis von 2-Komponenten-Beschichtungsmitteln enthalten

45 deshalb üblicherweise Lösungsmittel. Der hohe Lösungsmittelgehalt dieser Lacke bereitet jedoch Probleme, da die Verarbeiter der Lacke technisch aufwendige Maßnahmen ergreifen müssen, um zu ver-

meiden, daß die Lösungsmittel, die beim Auftrag und Trocknen der Lacke freigesetzt werden, in die Atmosphäre gelangen. Es wurden deshalb Härter gesucht, die die Viskosität der Bindemittel-haltigen Komponente möglichst wenig erhöhen oder sogar besser noch erniedrigen. Selbstverständlich dürfen diese Härter selbst bei Raumtemperatur keine nennenswerte Flüchtigkeit aufweisen, wie dies bei handelsüblichen monomeren Isocyanaten wie Hexamethylendiisocyanat oder Isophorondiisocyanat der Fall ist.

- 10 Weiterhin sollen die 2-Komponenten-Beschichtungsmittel nach der Applikation möglichst rasch aushärten, so daß die beschichteten Gegenstände nach dem Auftrag rasch weiterverarbeitet oder benutzt werden können.
- 15 Polyisocyanate, die Allophanat- und Biuretgruppen enthalten, sind beispielsweise aus der EP-A-496208, 524501 und 566037 bekannt und werden dort für den Einsatz als Härter in 2-Komponenten-Beschichtungssystemen empfohlen. Als Aufbaukomponenten kommen aliphatische Monoalkohole und alle üblichen Isocyanate in Betracht. Die
- 20 Aufbaukomponenten aus der Gruppe der cyclischen Monoalkohole bzw. Hexamethylendiisocyanat und Isophorondiisocyanat finden sich in diesen Schriften lediglich im Rahmen von Aufzählungen der geeigneten Isocyanat- und Alkoholkomponenten, die in Form von Listen zusammengefaßt sind. Wie aus dem experimentellen Teil dieser
- 25 Schriften hervorgeht, liegt der Schwerpunkt auf Polyisocyanaten mit Allophanat- und Biuretgruppen, die sich von nicht-cyclischen Alkoholen ableiten.

Die aus diesen Alkoholen abgeleiteten Allophanate weisen ins-30 besondere den Nachteil auf, daß die damit hergestellten 2-K-Beschichtungssysteme relativ langsam aushärten und auch nach vollständiger Aushärtung eine für manche Anwendungszwecke noch zu geringe Oberflächenhärte aufweisen.

35 Aus der DE-A-4229183 sind Urethangruppen- und Isocyanuratgruppenhaltige Polyisocyanate mit niedriger Viskosität bekannt. Zu deren Herstellung werden z.B. cycloaliphatische Alkohole wie Cyclohexanol mit einem Isocyanurat des Hexamethylendiisocyanats zum entsprechenden Urethan umgesetzt.

40

Die Eigenschaften der dort offenbarten Härter befriedigen zwar meist die üblichen Anforderungen, die bezüglich der verarbeitungstechnischen Eigenschaften der unausgehärteten flüssigen Lacksysteme, die diese Härter enthalten, und der Gebrauchseigen-

45 schaften der mit den Lacken hergestellten Beschichtungen gestellt werden. Bezüglich der Viskosität der Lacksysteme, deren Aushärtungsgeschwindigkeit sowie der Härte der damit hergestellten

Beschichtungen erscheinen die Härter allerdings noch verbesserungsbedürftig.

Demgemäß wurden die eingangs definierten Verbindungen der Formel 5 (I), Mischungen und 2-Komponenten-Beschichtungsmittel, die diese Verbindungen enthalten sowie Gegenstände, die mit diesen 2-Komponenten-Beschichtungsmitteln beschichtet sind, gefunden.

Die erfindungsgemäßen Diisocyanate der Formel (I) leiten sich

10 bevorzugt von Alkoholen wie Cyclohexanol, Cyclohexanmethanol,
Cyclopentanol, Cyclopentanmethanol, 3,3,5-Trimethylcyclohexanol,
Menthol, Norborneol, N-Methyl-4-hydroxypiperidin, 4-(2Hydroxyethyl)-morpholin oder 4-(2-Hydroxyethyl)-pyrrolidon ab.

15 Im allgemeinen lassen sich diese Diisocyanate herstellen, indem man

(i) Isophorondiisocyanat (IPDI), Hexamethylendiisocyanat (HDI), oder eine Mischung dieser Isocyanate mit einem

20

25

40

- 5 oder 6 gliedrigen cycloaliphatischen Alkohol, bei dem bis zu 3 an ein C-Atom gebundene Wasserstoffatome durch C₁- bis C₄-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich eine C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein können oder
- einem C₁- bis C₄-Alkylalkohol, bei dem ein an ein CAtom gebundenes Wasserstoffatom substituiert ist durch
 einen 5 oder 6 gliedrigen Cycloalkylrest, bei dem bis
 zu 3 Wasserstoffatome durch C₁- bis C₄-Alkylreste und
 ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich eine C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein
 können, einen Pyrrolidon- oder Morpholinrest, wobei bei
 den beiden letztgenannten Resten das N-Atom an den
 Alkylrest des Alkohols gebunden ist,

wobei das Molverhältnis der genannten Isocyanate zu dem genannten Monoalkohol 1.5:1 bis 20:1 beträgt, in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

- (ii) den Katalysator desaktiviert und
- 45 (iii) gegebenenfalls nicht umgesetztes Isocyanat entfernt.

Patente, Nierben u. Lizonzen

PAYENT COOPERATION TREAT

30. JULI 1999

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

BASF AKTIENGESELLSCHAFT D-67056 Ludwigshafen ALLEMAGNE

Applicant's or agent's file reference

0050/048714

Date of mailing (day/month/year) 22 July 1999 (22.07.99)

International application No. PCT/EP98/08383

International filing date (day/month/year)
18 December 1998 (18.12.98)/

Priority date (day/month/year) 16 January 1998 (16.01.98)

IMPORTANT NOTICE

Applicant

BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

EP,JP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

None

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

 Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 22 July 1999 (22.07.99) under No. WO 99/36455

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Wa

•			
			:
	3		

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

BASF AKTIENGESELLSCHAFT D-67056 Ludwigshafen ALLEMAGNE

Date of mailing (day/month/year) 09 March 1999 (09.03.99)	
Applicant's or agent's file reference 0050/048714	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/EP98/08383	International filing date (day/month/year) 18 December 1998 (18.12.98)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 16 January 1998 (16.01.98)

- 1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- 2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- 3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- 4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date
Priority application No.
Country or regional Office or PCT receiving Office
16 Janu 1998 (16.01.98)
198 01 322.1
DE
Date of receipt of priority document
24 Febr 1999 (24.02.99)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Col mbettes 1211 Geneva 20, Switz rland Authorized fficer

Céline Faust

Gour

Telephone No. (41-22) 338.83.38

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

5

Das molare Mischungsverhältnis der HDI/IPDI-Mischungen liegt bevorzugt bei 0,1:1 bis 10:1.

Die Umsetzung kann beispielsweise auf die Weise vorgenommen wer-5 den, wie sie in der EP-A-524501 beschrieben ist.

Als Katalysatoren dienen beispielsweise quartäre Ammoniumsalze, z.B. N,N,N-Trimethyl-N-(2-hydroxypropyl)ammonium-2-ethylhexanoat.

10 Die Umsetzung wird im allgemeinen bei Temperaturen von 50 bis 150°C durchgeführt.

Die Reaktion wird beendet, indem man die Reaktionsmischung abkühlt und den Katalysator entfernt, thermisch zersetzt oder ein 15 geeignetes Mittel zusetzt, das den Katalysator desaktiviert. Hierzu sind beispielsweise Säuren wie p-Toluolsulfonsäuren, Dibutylphosphat oder Di-(2-Ethylhexyl)phosphat geeignet.

Nach Beendigung der Reaktion destilliert man im allgemeinen unum-20 gesetztes Hexamethylendiisocyanat oder Isophorondiisocyanat, bevorzugt bis zu einem Gehalt von weniger als 0,5 Gew.-%, ab.

Das Umsetzungsprodukt, das im wesentlichen frei von Isophorondiisocyanat oder Hexamethylendiisocyanat ist, weist im allgemeinen 25 eine Viskosität von 100 bis 10000, bevorzugt von 150 bis 6000 mPas, gemessen nach ISO 3219, auf.

Nach diesem Verfahren erhält man im allgemeinen Mischungen, in denen neben den Diisocyanaten (Ia), (Ib) und/oder (Ic),

- Urethane der Formel (IV)

30

$$OCN-R^1-NH-CO-OR^3$$
 (IV)

in der die Reste R^1 und R^3 die folgende Bedeutung haben können:

R1 ein Rest der Formel (II) oder (III),

40 R³ die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung,

Diisocyanate der Formel (V),

6

in der die Reste R^1 , R^2 , R^4 und R^5 die folgende Bedeutung haben können:

R¹, R², R⁴ die für R¹ Formel (I) angegebene Bedeutung,

5

WO 99/36455

R⁵ 2 der insgesamt 4 Reste Wasserstoff und die beiden anderen Reste ein Rest der Formel VI

 $-CO-O-R^3 \qquad (VI)$

10

sind, wobei die Reste ${\rm R}^5$ mit der gleichen Bedeutung durch die Einheit ${\rm R}^2$ getrennt sind und

Isocyanurate, aufgebaut aus 3 Molekülen, ausgewählt aus der
 Gruppe Isophorondiisocyanat oder Hexamethylendiisocyanat, enthalten sein können.

In diesen Mischungen beträgt im allgemeinen

- 20 der Anteil der Summe der Diisocyanate (Ia), (Ib) und (Ic) 5
 bis 100 Gew.-%
 - der Anteil der Urethane der Formel (IV) 0 bis 20 Gew.-%,
- 25 der Anteil der Diisocyanate der Formel (V) 0 bis 30 Gew.-% und
- der Anteil der Isocyanurate, aufgebaut aus je 3 Molekülen, ausgewählt aus der Gruppe Isophorondiisocyanat oder Hexa methylendiisocyanat 0 bis 65 Gew.-%.

Vorzugsweise beträgt das Gew.-Verhältnis von Diisocyanaten (I) zu Monoisocyanuraten (VII) 10:1 bis 1:10.

35 Die Summe der Anteile der Diisocyanate (Ia), (Ib), (Ic), (V), des Urethans (IV) sowie des Isocyanurates (VII) macht bevorzugt 10 bis 100 Gew.-% aus.

Aus diesen Mischungen lassen sich, falls gewünscht, die erfin40 dungsgemäßen Diisocyanate einfach durch bekannte Trennmethoden
wie die Gelpermeationschromatographie isolieren. Dies ist jedoch
im allgemeinen nicht erforderlich, sofern diese Diisocyanate
(Ia), (Ib), (Ic), in Form der vorgenannten Mischungen als Vernetzer in 2-Komponenten-Polyurethanbeschichtungsmitteln eingesetzt
45 werden.

Die Diisocyanate (Ia), (Ib), (Ic) und die vorgenannten Mischungen, die diese Diisocyanate enthalten, eignen sich insbesondere als B-Komponente bei der Herstellung von 2-Komponenten-Beschichtungsmassen, die als A-Komponente eine Verbindung, die 5 mit Polyisocyanat reagierende Gruppen trägt, bevorzugt ein hydroxyfunktionelles Polymer (A), enthalten.

Bei den hydroxyfunktionellen Polymeren (A) handelt es sich z.B. um Polymere mit einem Gehalt an Hydroxylgruppen von 0,1 bis 20, 10 vorzugsweise 0,5 bis 10 Gew.-%. Das zahlenmittlere Molekulargewicht Mn der Polymeren beträgt vorzugsweise 1000 bis 100 000, besonders bevorzugt 2000 bis 10 000. Bei den Polymeren handelt es sich bevorzugt um solche, welche zu mehr als 50 Gew.-% aus C1-C20-Alkyl (meth) acrylat, Vinylaromaten mit bis zu 20 C-Atomen, Vinylestern von bis zu 20 C-Atomen enthaltenden Carbonsäuren, Vinylhalogeniden, nicht aromatischen Kohlenwasserstoffen mit 4 bis 8 C-Atomen und 1 oder 2 Doppelbindungen, ungesättigten Nitrilen und deren Mischungen bestehen. Besonders bevorzugt sind die Polymeren, die zu mehr als 60 Gew.-% aus C1-C10-Alkyl-(meth)-20 acrylaten, Styrol oder deren Mischungen bestehen.

Darüber hinaus enthalten die Polymeren (A) hydroxyfunktionelle Monomere entsprechend dem obigen Hydroxylgruppengehalt und gegebenenfalls weitere Monomere, z.B. ethylenisch ungesättigte Säuren, insbesondere Carbonsäuren, Säureanhydride oder Säureamide.

Weitere Polymere (A) sind z.B. Polyesterole, wie sie durch Kondensation von Polycarbonsäuren, insbesondere Dicarbonsäuren 30 mit Polyolen, insbesondere Diolen erhältlich sind.

Weiterhin sind als Polymere (A) auch Polyetherole geeignet, die durch Addition von Ethylenoxid, Propylenoxid oder Butylenoxid an H-aktive Komponenten hergestellt werden. Ebenso sind Polykonden-35 sate aus Butandiol geeignet.

Bei den Polymeren (A) kann es sich natürlich auch um Verbindungen mit primären oder sekundären Aminogruppen handeln.

40 Genannt seien z.B. sogenannte Jeffamine, d.h. mit Aminogruppen terminierte Polyetherole oder Oxazolidine.

Neben den vorstehend aufgeführten A- und B-Komponenten können in den 2-Komponenten-Beschichtungsmittel weiterhin sonstige Polyiso-45 cyanate und Verbindungen mit gegenüber Polyisocyanaten reaktions-

fähigen Gruppen enthalten sein, wie sie üblicherweise in Zweikomponenten-Beschichtungsmassen vorhanden sind.

Bevorzugt beträgt das molare Verhältnis, gebildet aus der Summe 5 der Isocyanatgruppen in den B-Komponenten gegenüber der Summe der mit Isocyanatgruppen reaktiven Gruppen der Komponente (A) 0,6:1 bis 1,4:1, bevorzugt 0,7:1 bis 1,3:1. ganz besonders bevorzugt 1:1.

10 Die erfindungsgemäßen Beschichtungsmassen können weiterhin noch organische Lösemittel, z.B. Xylol, Butylacetat, Methylisobutyl-keton, Methoxypropylacetat, N-Methylpyrrolidon enthalten. Mit Lösemittel wird die zur Verarbeitung, d.h. zum Auftragen auf Substrate, gewünschte niedrige Viskosität der Beschichtungsmasse eingestellt.

Die Beschichtungsmassen können natürlich weitere, in der Beschichtungstechnologie übliche Zusatzstoffe, z.B. Pigmente, Füllstoffe, Verlaufshilfsmittel etc. enthalten.

20

Sie können weiterhin Katalysatoren für die Urethanbildung, z.B. Dibutylzinndilaurat, enthalten.

Die Herstellung der Zweikomponenten-Polyurethanbeschichtungsmit25 tel kann in bekannter Weise erfolgen. Gewöhnlich werden die Aund die B-Komponente vor dem Auftrag der Beschichtungsmittel auf
ein Substrat gemischt. Die Vermischung erfolgt üblicherweise 0
bis 8 h vor dem Auftrag. Mit Lösungsmittel kann die gewünschte
Viskosität eingestellt werden.

30

Die Polyurethanbeschichtungsmittel können in üblicher Weise durch Spritzen, Gießen, Walzen, Streichen, Rakeln etc. auf Substrate flächig aufgebracht werden.

35 Die Beschichtungsmittel eignen sich insbesondere für Werkstücke mit Oberflächen aus Metall, Kunststoff, Holz, Holzwerkstoffen oder Glas.

Die gemäß diesen Verfahren beschichteten Gegenstände weisen eine 40 Oberfläche mit sehr guten mechanische Eigenschaften, insbesondere einer hohe Härte, Flexibilität und Chemikalienbeständigkeit auf. Diese Eigenschaften werden mit den erfindungsgemäßen Beschichtungsmitteln schon nach besonders kurzer Härtungszeit erreicht.

Experimenteller Teil

A. Herstellung der Urethan- und Allophanatgruppen enthaltenden Polyisocyanate

5

- A.1 Herstellung der Urethan- und Allophanatgruppen enthaltenden Polyisocyanate aus HDI und Monoalkoholen, sowie Vergleichsbeispiele
- Hexamethylendiisocyanat (HDI) wurde unter Stickstoffbedeckung vorgelegt und die in Tabelle 1 genannte Menge an OH-Komponente zugesetzt. Man erwärmte die Mischung auf 80°C, gab 200 Gew. ppm (bezogen auf Diisocyanat) des Katalysators N,N,N-Trimethyl-N-(2-hydroxypropyl)ammonium-2-ethylhexanoat
- zu, ließ bei dieser Temperatur reagieren und stoppte die Reaktion bei dem in Tabelle 1 genannten NCO-Gehalt der Mischung durch Zugabe von 250 Gew. ppm (bezogen auf Diisocyanat) Di-(2-Ethylhexyl)phosphat. Das Reaktionsgemisch wurde anschließend zur Entfernung vom monomeren HDI im Dünnschicht-
- verdampfer bei 165°C Öltemperatur und 2,5 mbar destilliert. Der HDI-Restmonomergehalt lag danach unter 0,2 Gew.%.

Daten zu den Endprodukten stehen in Tabelle 1.

25 A.2 Herstellung eines Urethan- und Allophanatgruppen enthaltenden Polyisocyanates aus IPDI und Cyclohexanol

6 mol IPDI wurden unter Stickstoffbedeckung vorgelegt und
1,2 mol (20 mol%) Cyclohexanol zugesetzt. Man erwärmte die
30 Mischung auf 70°C, gab 800 Gew. ppm (bezogen auf Diisocyanat)
des in A.1 genannten Katalysators zu, ließ bei dieser Temperatur reagieren und stoppte die Reaktion bei einem NCO-Gehalt
der Mischung von 27 Gew.% durch Zugabe von 1000 Gew.ppm
(bezogen auf Diisocyanat) Di-(2-Ethylhexyl)phosphat. Das
Reaktionsgemisch wurde anschließend zur Entfernung von monomerem IPDI im Dünnschichtverdampfer bei 165°C Öltemperatur

Das feste Endprodukt hatte einen NCO-Gehalt von 15,4 % und einen Erweichungspunkt bei 43°C.

und 2,5 mbar destilliert.

- A.3 Herstellung eines Urethan- und Allophanatgruppen enthaltenden Polyisocyanates aus einer IPDI-HDI-Mischung und Cyclohexanol
- Eine Mischung aus 4 mol HDI und 1,5 mol IPDI wurde unter Stickstoffbedeckung vorgelegt und mit 1,1 mol (20 mol%) Cyclohexanol versetzt. Man erwärmte die Mischung auf 80°C,

gab 650 Gew. ppm (bezogen auf Diisocyanat) N,N,N-Trimethyl-N-(2-hydroxypropyl)ammonium-2-ethylhexanoat zu, ließ bei dieser Temperatur reagieren und stoppte die Reaktion bei einem NCO-Gehalt der Mischung von 31 Gew.% durch Zugabe von 800 Gew ppm (bezogen auf Diisocyanat) Di-(2-Ethylhexyl)-phosphat. Das Reaktionsgemisch wurde anschließend zur Entfernung vom monomerem IPDI im Dünnschichtverdampfer bei 165°C Öltemperatur und 2,5 mbar destilliert.

Das Endprodukt hatte einen NCO-Gehalt von 17,1 % und eine Viskosität bei 25°C von 4310 mPas.

5

35

40

45

10

B. Herstellung und Prüfung von Klarlacken aus den erfindungsgemäßen Polyisocyanaten

15 Die erfindungsgemäßen Polyisocyanate wurden exemplarisch mit einem hydroxifunktionellen Acrylatharz (Lumitol® H 136, BASF) sowie verschiedenen Polyisocyanathärtern (Vergleichslack 1: Basonat® HI 100, BASF, Vergleichslack 12: Allophanat auf Ba-20 sis HDI mit 20 mol% Ethylhexanol) entsprechend den stöchiometrischen OH/NCO-Verhältnissen gemischt und bei Bedarf zur Beschleunigung der Aushärtung mit Dibutylzinndilaurat (DBTL, Merck) katalysiert. Die Einstellung auf eine Applikationsviskosität von 20 s (DIN 53 211 Becher 4 mm Auslaufdüse) er-25 folgte mit Butylacetat. Die Verarbeitungszeiten der Lacke wurden anhand der Katalysatordosierung so eingestellt, daß Trocknungszeiten von ca. 1 h erreicht wurden. Mit einem Filmziehrahmen wurden auf Glasplatten Beschichtungen mit einer Naßfilmdicke von 200 µm aufgetragen. Die so erhaltenen Klar-30 lacke wurden 7 Tage unter Normklima gehärtet. Die Festgehalte

wurden nach DIN V 53 216 1. Teil bestimmt.

Die mit den erfindungsgemäßen Vernetzern hergestellten Lacke weisen gegenüber einem Standardisocyanat (Lack-Nr.1 Vergl.) verbesserte Lackfestgehalte, bzw. einen geringeren Anteil an flüchtigen organischen Bestandteilen (VOC) auf. Das bedeutet, daß man, um Lacke mit gleicher Viskosität zu erhalten, im Fall der mit den erfindungsgemäßen Isocyanaten hergestellten Lacke weniger Lösungsmittel benötigt.

Gegenüber einem aus nicht-cycloaliphatischen Alkoholen aufgebauten Allophanat weisen die erfindungsgemäßen Lacke eine deutlich höhere Anfangs- und Endhärte auf (vgl. Tab. 4, Lack-Nr. 12 (Vergleichsvers.) mit den erfindungsgemäßen Lakken). Bei Verwendung von N-Alkyl-Hydroxypiperidin erübrigt

sich zudem der Zusatz eines Katalysators zur Aushärtung der Beschichtungsmittel.

Alle Lacke zeigen darüber hinaus eine gute Flexibilität, Haftung sowie eine gute Kratzbeständigkeit.

Tabelle 1: Reaktionsprodukte aus HDI und Monoalkoholen

10	Versuch Nr.	Monoalkohol	Menge bez. Isocyanat (mol %)	NCO-Gehalt der Mischung (Gew.%)	NCO-Gehalt nach Destillation (Gew.%)	Viskosität bei 25°C (mPas)
	1	Cyclohexanol	5	40,2	20,7	1220
	2	Cyclohexanol	10	36,9	19,5	1120
	3	Cyclohexanol	15	35,7	18,3	890
15	4	Cyclohexanol	20	34,1	17,4	770
13	5	Cyclopentanol	5	40,1	21,0	980
	6	Cyclopentanol	10	38,2	19,8	660
	7	Cyclor entanol	15	36,8	18,3	610
	8	Cyclopentanol	20	34,6	17,1	650
	9	Cyclohexan-methanol	20	35,8	16,0	360
20	10	Cyclopentan-methanol	20	35,0	18,6	560
20	11	3,3,5-Trimethylcyclo- hexan	10	36,2	18,3	1830
	12	3,3,5-Trimethylcyclo- hexan	20	32,2	15,9	1620
	13	Menthol	20	34,6	14,5	1330
25	14	Norborneol	10	35,8	19,0	1810
45	15	Norborneol	20	33,0	16,9	1320
	16	N-Methyl-4-hydroxy- piperidin	10	36,0	12,9	1320
30	17	N-Methyl-4-hydroxy- piperidin	20	29,0	10,0	3340
	18	4-(2-Hydroxy- ethyl)-morpholin	5	39,1	18,3	4550
	19	4-(2-Hydroxy- ethyl)-morpholin	20	28,1	15,3	3580
35	20	N-(2-Hydroxy- ethyl)-2-pyrrolidon	20	32,3	16,2	2020
	21(Vergleich)	n-Butanol	20	33,5	18,3	273
	22 (Vergleich)	2-Ethylhexanol	20	31,2	16,5	343

Tabelle 2:Verbesserte VOC-Werte gegenüber Stand der Technik

Lack	l(Vgl.)	2	3	4	5	6	7
Polyisocyanat (Tab.1)	HI 100	5	6	7	-1	2	3
Alkohol			yclopentan	ol		yclohexano	ol
Hydroxyacrylat	H 136	H 136	H 136	H 136	H 136	H 136	H 136
% DBTL f.a.f. ¹⁾	0,05	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
Pendeldämpfung nach Kö	20	16	17	17	25	20	20
		l lo	1 17	17	25	l 20 i	20
nach 5h						1	20
7d RT+15h 60°C	143	139	142	144	141	140	141
	143		142	144	141	140	

Tabelle 3: Verbesserte VOC-Werte gegenüber Stand der Technik

Lack	l(Vgl.)	8	9	10	
Polyisocyanat (Tab.1)	HI 100	11	14	16	···
Alkohol	-	3,3,5—Tri- methylcyclo- hexan	Norbor- neol	N-Me- thyl-4-hydro- xy-piperidin	

Hydroxyacrylat	H 136	H 136	H 136	H 136	
% DBTL f.a.f. 1)	0,05	0,1	0,1	-	

Lackhärte

Pendeldämpfung nach König [Schwingungen]

nach 5h	20	13	13	111	
7d RT+15h 60°C	143	144	140	130	

35 Flüchtige organische Bestandteile

VOC e/l				
I VOC 2/I		405	492	
	1 212		772	

¹⁾ fest auf fest

Tabelle 4: Verbesserte Trocknungszeiten gegenüber niederviskosen Produkten nach Stand der Technik (vergleichbare VOC-Werte)

5 Lackzusammensetzung				
Lack	12(Vgl.)	13	14	15
Polyisocyanat (Tab.1)	22	4	19	17
Alkohol	2-Ethyl- hexanol	Cyclo- hexanol	N-(2-Hydroxy- ethyl)morpholin	N-Me- thyl-4-hydroxy- piperidin
0 Hydroxyacrylat	H 136	H 136	H 136	H 136
% DBTL f.a.f.	0,1	0,1	0,1	H 130
İ				
Lackhärte Pendeldämpfung nach K	Lönig [Schwing	ungen]		
Lackhärte Pendeldämpfung nach K nach 5h	König (Schwing	ungen]	25	112
Pendeldämpfung nach K			25 135	112 135
Pendeldämpfung nach K nach 5h	10	18		

Lumitol H 136: Festgehalt = 70 %, OHZ = 135 Basonat HI 100: HDI-Polyisocyanat, Viskosität ca. 3000 mPas, Festgehalt = 100 %, NCO = 22 %

30

25

35

40

Patentansprüche

1. Diisocyanate der Formel (I),

5

OCN—
$$R^1$$
— N — CO — NH — R^2 — NCO

(I)

 CO
 OR^3

in der die Reste die folgende Bedeutung haben:

R¹, R²: beide Reste ein Rest der Formel (II)

15

35

10

$$-CH2-CH2-CH2-CH2-CH2-CH2-CH2-$$
 (II)

(Diisocyanate Ia)

ein Rest ein Rest der Formel (II) und der andere Rest ein Rest der Formel (III)

 $\begin{array}{c|c}
 & H_3C & CH_2 \\
 & CH_3
\end{array} (III)$

(Diisocyanate Ib)

30 beide Reste ein Rest der Formel (III) (Diisocyanate Ic),

R³: - ein 5 oder 6 gliedriger Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3 Wasserstoffatome durch C₁- bis C₄-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder eine tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein können oder

ein C₁- bis C₄-Alkylrest, bei dem ein Wasserstoffatom substituiert ist durch einen 5 oder 6 gliedrigen Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3 Wasserstoffatome durch C₁bis C₄-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C₁- bis C₄-Alkylrest trägt, substituiert sein können, einen Pyrrolidon- oder einen Morpholinrest, wobei bei den beiden letztgenannten Resten das N-Atom an den Alkylrest gebunden ist.

PCT/EP98/08383

- Diisocyanate nach Anspruch 1, bei denen der Rest R³ von einem
 Alkohol, ausgewählt aus der Gruppe Cyclohexanol, Cyclohexanmethanol, Cyclopentanol, Cyclopentanmethanol, 3,3,5-Trimethylcyclohexanol, Menthol, Norborneol, N-Methyl-4-hydroxypiperidin, 4-(2-Hydroxyethyl)-morpholin oder 4-(2-Hydroxyethyl)-
- 10 pyrrolidon abgeleitet ist.
 - 3. Mischungen enthaltend
 - Diisocyanate (Ia), (Ib) und/oder (Ic),
- 15 Urethane der Formel (IV)

 $OCN-R^1-NH-CO-OR^3$ (IV)

in der die Reste R^1 und R^3 die folgende Bedeutung haben können:

R1 ein Rest der Formel (II) oder (III)

R3 die in Anspruch 1 angegegebene Bedeutung,

25 - Diisocyanate der Formel (V),

30

40

45

in der die Reste R^1 , R^2 , R^4 und R^5 die folgende Bedeutung haben können:

 R^1 , R^2 , R^4 die für R1 in Formel (I) angegebene Bedeutung,

R⁵ 2 der insgesamt 4 Reste Wasserstoff und die beiden anderen Reste ein Rest der Formel VI

-CO-O-R³ (VI)

sind, wobei die Reste R^5 mit der gleichen Bedeutung durch die Einheit R^2 getrennt sind und

16

Isocyanurate, aufgebaut aus 3 Molekülen, ausgewählt aus der Gruppe Isophorondiisocyanat oder Hexamethylen-diisocyanat (Monoisocyanurate VII).

- 5 4. Mischungen nach Anspruch 3, wobei das Gew.-Verhältnis von Diisocyanaten (I) zu Monoisocyanuraten (VII) 10:1 bis 1:10 beträgt.
- Mischungen nach Anspruch 3 oder 4, wobei der Anteil an Iso phorondiisocyanat oder Hexamethylendiisocyanat weniger als
 0,5 Gew.-% beträgt.
- 6. Mischungen nach den Ansprüchen 3 bis 5, wobei die Summe der Anteile der Diisocyanate (Ia), (Ib), (Ic), (V), des Urethans
 15 (IV) sowie des Isocyanurates (VII) 10 bis 100 Gew.-% ausmacht.
 - Verfahren zur Herstellung von Mischungen nach Anspruch 3 bis
 dadurch gekennzeichnet, daß man

20

45

- (i) Isophorondiisocyanat, Hexamethylendiisocyanat, oder eine Mischung dieser Isocyanate mit einem
- 5 oder 6 gliedrigen cycloaliphatischen Alkohol,
 bei dem bis zu 3 an ein C-Atom gebundene Wasserstoffatome durch C₁- bis C₄-Alkylreste und ein
 oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein tertiäres Stickstoffatom,
 das zusätzlich einen C₁- bis C₄-Alkylrest trägt,
 substituiert sein können oder
- C1- bis C4-Alkylalkohol, bei dem ein an ein C-Atom gebundenes Wasserstoffatom substituiert ist durch einen 5 oder 6 gliedrigen Cycloalkylrest, bei dem bis zu 3 Wasserstoffatome durch C1- bis C4-Alkylreste und ein oder zwei Methyleneinheiten durch ein Sauerstoffatom und/oder ein tertiäres Stickstoffatom, das zusätzlich einen C1- bis C4-Alkylrest trägt, substituiert sein können, einen Pyrrolidon- oder Morpholinrest, wobei die beiden letztgenannten Reste über das N-Atom an den Alkylrest des Alkohols gebunden sind,

17

wobei das Molverhältnis der genannten Isocyanate zu dem genannten Monoalkohol 1,5:1 bis 20:1 beträgt, in Gegenwart eines Katalysators umsetzt,

- 5 (ii) den Katalysator desaktiviert und
 - (iii) gegebenenfalls nicht umgesetztes Isocyanat entfernt.
- 8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzung so lange durchführt, bis das erhaltene Umsetzungsprodukt nach der Entfernung von noch gegebenenfalls vorhandenem nicht umgesetzten Isophorondiisocyanat oder Hexamethylendiisocyanat eine Viskosität von 100 bis 10000 mPas, gemessen nach ISO 3219, Anhang B aufweist.

15

9. Zwei-Komponenten-Beschichtungsmittel, enthaltend eine Verbindung, die mit Polyisocyanat reagierende Gruppen trägt (A-Komponente), sowie eine Verbindung der Formel (I) (B-Komponente).

20

- 10. Verfahren zum Beschichten von Gegenständen, dadurch gekennzeichnet, daß man
- eine Beschichtungszusammensetzung nach Anspruch 9 durch 25 Vermischung der Komponenten (A) und (B) herstellt und
 - die Beschichtungszusammensetzung innerhalb von 12 h nach deren Herstellung auf einen Gegenstand flächig aufträgt.
- 30 11. Beschichtete Gegenstände hergestellt nach Anspruch 10.

35

40

			•

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 C08G18/78 C09I C09D175/04 C08G18/79 C08G18/80 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 C08G C09D Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Category ° Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. P,X US 5 789 519 A (SLACK WILLIAM E ET AL) 1-4,7,9,4 August 1998 see column 1, line 46 - column 6, line 18 see examples 9-11; table 1 see claims 1,2,4,21 Α EP 0 535 483 A (MILES INC) 7 April 1993 1.3.7 - 9see page 2, column 2, line 49 - page 5, column 7, line 6 see example 1 see claims 1,5,10 Α US 5 290 902 A (JACOBS PATRICIA B ET AL) 1,3,7,9 1 March 1994 see column 2, line 50 - column 8, line 17 see examples 1,2,5 see claims 1-3,13 -/--X Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance invention earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention filing date cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 14 April 1999 26/04/1999 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,

Fax: (+31-70) 340-3016

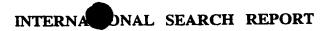
Neugebauer, U





		PUITER 98	,
Category 3	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages		Relevant to claim No.
C.(Continu	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages DE 42 29 183 A (BASF AG) 3 March 1994 cited in the application see page 3, line 23 - page 4, line 59 see example XI; table II see claims 1,3		Relevant to claim No.

1



Information on patent family members

Intr .onal Application No PCT/EP 98/08383

Patent document cited in search report	rt	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 5789519	Α	04-08-1998	CA	2187124 A	13-10-1997
EP 0535483	A	07-04-1993	CA DE ES US DE	2097373 A 69210932 D 2087386 T 5444146 A 69210932 T	01-12-1994 27-06-1996 16-07-1996 22-08-1994 02-10-1996
US 5290902	Α	01-03-1994	CA	2125237 A	23-12-1994
DE 4229183	A	03-03-1994	AT CA DE DK EP ES JP US ZA	151791 T 2105325 A 59306163 D 585835 T 0585835 A 2099875 T 6157709 A 5369207 A 9306431 A	15-05-1997 03-03-1994 22-05-1997 20-05-1997 09-03-1994 01-06-1997 07-06-1994 29-11-1994 01-03-1995

		•
		•

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 6 C08G18/78 C09D175/04 C08G18/79

C08G18/80

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) $IPK \ 6 \ C08G \ C09D$

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Р,Х	US 5 789 519 A (SLACK WILLIAM E ET AL) 4. August 1998 siehe Spalte 1, Zeile 46 - Spalte 6, Zeile 18	1-4,7,9, 10
	siehe Beispiele 9-11; Tabelle 1 siehe Ansprüche 1,2,4,21	
A	EP 0 535 483 A (MILES INC) 7. April 1993 siehe Seite 2, Spalte 2, Zeile 49 - Seite 5, Spalte 7, Zeile 6 siehe Beispiel 1 siehe Ansprüche 1,5,10	1,3,7-9
	-/ 	

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen	Siehe Anhang Patenttamilie
 Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist 	 "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kolidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derseiben Patentfamilie ist
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 14. April 1999	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 26/04/1999
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter Neugebauer, U



Int Jonales Aktenzeichen
PCT/EP 98/08383

A 15		PCI/EP 9	
Kategorie ³	zung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	nenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 5 290 902 A (JACOBS PATRICIA B ET AL) 1. März 1994 siehe Spalte 2, Zeile 50 - Spalte 8, Zeile 17 siehe Beispiele 1,2,5 siehe Ansprüche 1-3,13		1,3,7,9
Α	DE 42 29 183 A (BASF AG) 3. März 1994 in der Anmeldung erwähnt siehe Seite 3, Zeile 23 - Seite 4, Zeile 59 siehe Beispiel XI; Tabelle II siehe Ansprüche 1,3		1-3

loi

Int: onales Aktenzeichen PCT/EP 98/08383

Im Recherchenberich angeführtes Patentdokur		Datum der Veröffentlichung	~	/litglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5789519	Α	04-08-1998	CA	2187124 A	13-10-1997
EP 0535483	A	07-04-1993	CA DE ES US DE	2097373 A 69210932 D 2087386 T 5444146 A 69210932 T	01-12-1994 27-06-1996 16-07-1996 22-08-1994 02-10-1996
US 5290902	Α	01-03-1994	CA	2125237 A	23-12-1994
DE 4229183	A	03-03-1994	AT CA DE DK EP ES JP US ZA	151791 T 2105325 A 59306163 D 585835 T 0585835 A 2099875 T 6157709 A 5369207 A 9306431 A	15-05-1997 03-03-1994 22-05-1997 20-05-1997 09-03-1994 01-06-1997 07-06-1994 29-11-1994 01-03-1995

			•
			4
			•